

# プラズマプロセス装置の高速ガス置換技術に関する研究

著者	森下 貞治
号	53
学位授与番号	4123
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/42537">http://hdl.handle.net/10097/42537</a>

もりしたさだはる  
氏 名 森 下 貞 治  
授 与 学 位 博士 (工学)  
学位授与年月日 平成21年3月25日  
学位授与の根拠法規 学位規則第4条第1項  
研究科, 専攻の名称 東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 電子工学専攻  
学 位 論 文 題 目 プラズマプロセス装置の高速ガス置換技術に関する研究  
指 導 教 員 東北大学教授 伊藤 隆司  
論 文 審 査 委 員 主査 東北大学教授 伊藤 隆司 東北大学教授 高橋 研  
東北大学教授 吉信 達夫 東北大学客員教授 大見 忠弘  
東北大学准教授 小谷 光司

## 論 文 内 容 要 旨

現在, 半導体製造分野のみならず, 大型ディスプレイ, 太陽電池製造分野においても製品の性能に影響を与える全てのパラメータを完全に所定の値に制御し, また同じ装置で複数の異なる工程が処理できるシングルチャンバ/マルチプロセスの製造装置を用いて, 多品種生産, 高生産性, 製造コスト低減にフレキシブルに対応することが今後の発展に大きく影響を及ぼすと考えられる。これらに対応するためには 1 原子層目から原子の成分比を完全に制御する高速ガス置換技術が必要不可欠である。そこで本研究ではプラズマ発光強度によりチャンバ内ガス濃度変化を算出する評価手法を提案し, ガスフローパターンがガス置換特性に与える影響を評価した。またその成果をパルス制御ガス供給によるガス置換に適用することで高速ガス置換技術を確立した。パルス制御においては干渉行列を用いた最適パルス制御条件演算手法を提案している。また最後に, 確立した本技術を連続成膜プロセスに適用し, その効果・有効性の検証を行った。本論文はこれらの研究成果をまとめたもので, 全文 5 章よりなる。

第 1 章は, 序論である。

第 2 章では, パルス制御による高速ガス置換技術のプラズマプロセスへの適用について検討した結果についてまとめている。先行研究の紹介の中で, 従来使用されている流量制御器であるマスフローコントローラーでは流量のオーバーシュートが発生するため高精度なガス流量制御を行うことは不可能であり, 圧力調整式流量制御器 (FCS) の使用によりオーバーシュートの無い高精度なガス流量制御が可能であることを示した。パルス制御による高速ガス置換を行う場合, 目的としたパルス流量の精密供給が必要であり, FCS の使用は必須である。

また高速ガス置換を行うためにはチャンバ内ガス濃度測定技術の確立は必須であるが, 従来手法である FT-IR を用いた方法では検出感度の問題から 500 Pa 以上でしかガス濃度測定が実施出来なかった。しかしこの圧力領

域ではプラズマプロセスで主流であるコンマ数 Pa ～ 数 100 Pa でのガス濃度測定に対応出来ない。そこで本研究ではプラズマ発光強度とガス濃度との関係を示した検量線による評価手法を提案し、広い圧力領域でガス濃度変化測定を実現することが出来た。この手法により、非常に簡易的で汎用性の高いガス濃度変化測定が可能となる。このガス濃度変化測定手法により、FCS を用いたパルス制御方式による高速ガス置換をプラズマプロセスチャンバに導入し、パルス保持時間を最適化することで、ガス濃度変化のオーバーシュートの無い高速なガス置換の実現を実プラズマプロセスで実証することが出来た。一例として、Ar/HBr (圧力: 4 Pa) プロセスにおいて、従来手法 (ステップ制御) と比べて、パルス制御による高速ガス置換では置換時間を  $1/17$  ( $3.4 \text{ s} \Rightarrow 0.2 \text{ s}$ ) に短縮出来る結果を示した。以上の結果から、プラズマ発光強度とガス濃度との関係を示した検量線によるガス濃度評価手法を用いることで、従来では実現出来ていなかった実プラズマプロセス圧力条件での、パルス制御による高速ガス置換技術を確立することが出来た。

第3章では、上段シャワープレート、横噴出しガスリングを用いた場合での、チャンバ内ガスフローパターンの違いが、ガス置換特性に与える影響について検討した結果についてまとめている。

実験系の排気システムにおいてはスクリーブースターポンプを使用しており、0.133 ～ 1333 Pa に亘って一定の排気速度で機能し、また  $\text{N}_2$ ,  $\text{H}_2$  といったガス種が異なった場合でも、同等の排気速度で機能するポンプであることを示した。シングルチャンバ/マルチプロセスにおいては、様々な圧力で、様々なガスが使用されるため、スクリーブースターポンプのような高性能なポンプの使用が非常に重要である。

上段シャワープレート (穴数 2400, 1200)、マイクロ波の装置では従来使用されている横噴出しガスリングを用いたガス置換時間の評価 (チャンバ圧力: 1.3 ～ 266 Pa, ガス供給流量: 60 ～ 1000 sccm) によって、全条件で置換時間は上段シャワープレート (穴数 2400) < 上段シャワープレート (穴数 1200) < 横噴出しガスリングの順に長くなることが確認出来た。また上段シャワープレートで、穴数 2400, 1200 個での結果を見ると、穴数の多い方の置換時間が短くなっており、穴数の違いによる置換特性への影響も確認出来た。上段シャワープレート 穴数 2400, 1200 個の同条件でのガス噴出し流速を見てみると、流速の遅い穴数 2400 の置換時間が短いことから、噴出し流速を低く抑えたガス供給が、置換特性向上に効果的であることを見出すことが出来た。また、上段シャワープレート (穴数 2400, 1200 個)、横噴出しガスリング共に粘性流領域 (133, 266 Pa) において、置換時間に対するガス流量依存性が大きいことがわかった。上段シャワープレート (穴数 2400 個) の場合、ガス供給流量が 1000 sccm になると、4 ～ 266 Pa の圧力領域で 1 s 前後でのガス置換が可能であることが確認出来た。一方、横噴出しガスリングの場合、ガス供給流量が 1000 sccm, 圧力領域が 4 ～ 266 Pa となっても、5 ～ 10 s の置換時間が必要となることが確認出来た。これらの結果から、ガスフローパターンが置換特性に大きく影響し、層流状のガスダウンフローによるチャンバへのガス供給が、従来、マイクロ波プラズマ装置において主に用いられているチャンバ壁からの横噴出しによるガス供給方法と比べて置換特性を大きく向上させることを実験

的に検証することが出来た。

また上段シャワープレート（穴数 2400, 1200）を用いた場合、高圧、高流量条件において、層流状の理想的なダウンフローによる置換時間の理論計算値とほぼ同じガス置換を実現出来ることを見出すことが出来た。本研究で用いたプラズマ装置では、チャンバ圧力：133 Pa，ガス供給流量：600 sccm 以上の条件で、層流状の理想的なダウンフローによる置換時間の計算値とほぼ同じガス置換を実現することが出来た。

上段シャワープレート（穴数 2400），スクリープスターポンプを用いたガス置換を行うことで， $H_2 \Rightarrow Ar$  置換と  $N_2 \Rightarrow Ar$  置換 で，広い圧力域（4, 13.3, 133 Pa）でほぼ同じ置換特性を実現することができ，またターボ分子ポンプを用いた  $H_2 \Rightarrow Ar$  ガス置換時間と比較すると，圧力条件（4, 13.3, 133 Pa）で  $1/3 \sim 1/25$  の置換時間が実現出来ることを確認することが出来た。

第4章では，チャンバ内ガス置換において，ガスの供給方法の違いによる各ガスフローパターンが，どのようなガス置換モードになっているのかを詳しく分析した。またパルス制御による高速ガス置換で，パルス制御条件最適値の自動演算手法について提案を行い，高速ガス置換技術の連続成膜プロセスにおける効果・有効性について検証を行った結果についてまとめている。

チャンバ内ガス濃度変化において，均一拡散パターンとダウンフローパターンによるガス置換時間の計算値と，上段シャワープレート，横噴出しガスリングを用いたガス置換時間の実験値との比較の結果，ガスフローパターンにより置換特性が大きく変化し，上段シャワープレートを用いた場合，均一拡散パターンによる変化と比べるとよりダウンフローパターンに近い置換特性を実現できていることが確認出来た。またチャンバ内圧力が粘性流領域であると，ダウンフローパターンの計算値とほぼ同じ置換特性となり，高圧，高流量の置換条件では，完全な層流状のダウンフローが実現出来ることを見出すことが出来た。また，横噴出しガスリングを用いた場合，均一拡散パターンよりも置換時間が長くなり，不均一拡散パターンに近いことが確認出来た。チャンバ内圧力が粘性流領域であっても，チャンバ壁から横に噴出す状態でガスを供給するため，チャンバ中央部にまでガスが到達できず，ガス濃度の偏りが生じてしまい，ガス置換に長い時間を必要とするためであると考えられる。

上段シャワープレートによりプラズマ励起ガスを供給し，下段シャワープレートによりプラズマプロセスガスを供給した場合での，プラズマプロセスガスの置換特性を調べた結果，プラズマプロセスで主流である数 Pa ～ 数 10 Pa の圧力域では，均一拡散とダウンフローパターンの中間の置換特性パターンとなってしまう，また，下段シャワープレートから供給するプロセスガス流量は，一般的にプラズマ励起用ガス流量と比べると少ない流量条件となるため，完全な層流状のダウンフローが実現出来る高圧，高流量のプロセス条件にはなり難い。また完全な層流状のダウンフローが実現出来たとしても，置換時間は1～数秒程度となるため，1原子層目から原子の成分比を完全に制御できる高速なガス置換を実現することは難しいことがわかった。そのため，パルス制御による，より高速なガス置換の実現が必要である。

そこで、パルスガス供給条件自動演算方式を提案した。この手法は、ガス流量とチャンバ内ガス濃度との関係が線形（比例）の関係であり、重ね合わせの原理が成り立つことを利用したものである。従来手法（ステップ制御）によるガス供給を行い、その際のガス濃度時間変化データを収集することで、ガス流量の時間入力に対するガス濃度の時間出力を行列化した干渉行列を作成し、その行列式を用いてパルス条件の最適値を算出するものである。その効果を検証した結果、設定時間通りの高速ガス置換を実現でき、高速ガス置換の最適なガス供給条件演算方式を確立することが出来た。

これら検討を行った高速ガス置換技術を、ノンドープ ZnO, Ga ドープ ZnO 連続成膜プロセスに適用し、その効果・有効性を検証した。プロセス切り替えの際、パルス制御によるガス置換を行った場合、従来手法と比べて約 1/10 でガス置換を行うことができ、同様に膜組成の未制御領域も約 1/10 に抑制可能であることが、実験による分析・検証で明らかとなった。パルス制御による高速ガス置換技術により、1 原子層目から原子の成分比を制御できることを実証することが出来た。

また、ガス濃度測定用検量線作成、ガス濃度算出、パルスガス供給条件演算を自動で行う高速ガス置換モジュールを開発し、高速ガス置換技術を実用化へと繋げている。

第5章は、結論である。

以上要するに本論文は、1 原子層目から原子の成分比を完全に制御するために必要不可欠な高速ガス置換技術を確立したもので、今後のエレクトロニクス製造技術の発展に寄与するところが少なくない。

# 論文審査結果の要旨

半導体、平面ディスプレイ、太陽電池製造分野において、多品種生産に対応し製造コストを低減するために、ひとつのチャンバで複数のプロセスを処理できる製造装置の重要性が増している。これに対応するためには、プロセス初期反応層から原子の成分比を瞬時に制御するチャンバ内の高速ガス置換技術が必要である。本研究では、チャンバ内ガス濃度の時間変化を精密に測定し、ガス供給方法がガス置換特性に与える影響を解析した。さらに、最適なガス供給方法にパルス制御を導入することにより、プラズマプロセス装置の高速ガス置換技術を確立した。本論文はこれらの研究成果をまとめたもので、全文5章よりなる。

第1章は、序論である。

第2章では、プラズマプロセスで用いる圧力数 Pa ～ 数百 Pa でのガス濃度の初期投入時からの時間変化の測定方法を提案した。従来方法である FT-IR を用いたガス濃度測定法では、検出感度の関係から 500 Pa 以上の圧力でしか測定出来なかったが、プラズマ発光強度とガス濃度の関係を示す検量線を用いることで、数 Pa 以上の広い圧力領域のガス濃度測定を可能にした。これは、実プロセス条件におけるガス濃度の時間変化を評価する上で重要な成果である。

第3章では、マイクロ波励起プラズマ CVD チャンバを一例として、チャンバ内ガス置換時間を測定することでガス供給方法を評価し、ガス置換特性を向上させるガス供給条件を明らかにした。チャンバ上部から排気方向にガスを供給する上段シャワープレート、チャンバ壁から横方向にガスを供給する横吹出しガスリングでのガス置換時間を比較し、上段シャワープレートからのガス導入によるガス置換時間が粘性流から分子流領域にわたって短いことを確認し、約 100 Pa 以上の高ガス圧力、高流量条件の下で層流のダウンフローによる置換特性となることを見出した。これらの知見は、高速ガス置換を行うプラズマプロセス装置の設計上重要である。

第4章では、チャンバ内のプロセスガスの高速置換を実現するパルス制御条件の最適化方法を提案した。従来方法によるガス濃度変化データから干渉行列を作成し、行列式からパルス制御条件の最適値を算出した。この方法を Ar/HBr のガスフローに適用し、設定時間通りのガス置換が実現出来ることを実証した。また、プラズマを用いた MOCVD による ZnO と Ga ドープ ZnO の連続成膜プロセス用に本開発の高速ガス置換技術を適用し、Ga 濃度プロファイルから、堆積膜の成分比が原子層レベルで制御可能であることを明らかにした。このことは本開発技術が実用機で有用であることを実証したものであり、工学的に重要な成果である。

第5章は、結論である。

以上要するに本論文は、1 原子層目から原子の成分比を完全に制御するために必要なプラズマプロセス装置における高速ガス置換技術を確立したもので、半導体プロセス工学および電子工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。